

有机电致发光器件的热传导特性研究

薛媛^{1,2}, 王小力¹, 吴朝新², 候洵²

(1. 西安交通大学理学院, 710049, 西安; 2. 西安交通大学陕西省信息光子技术重点实验室, 710049, 西安)

摘要: 采用简化热阻模型和一维稳态有内热源的热传导方程, 对有机电致发光(OLED)器件的热传导特性进行了研究. 为了改善 OLED 器件的性能, 设计并实现了一种新型结构的 OLED 器件. 在给定的 OLED 器件的结构、输入功率、对流换热和热物性参数等因素情况下, 推导得出 OLED 器件运行时温度升高与输入功率, 基片及各功能层薄膜的热导系数、厚度、面积等之间的关系式, 建立了 OLED 器件内部的温度分布关系. 研究表明, 器件内的有机层和基底的传热性能是影响器件温度分布的重要因素, 在功率密度为 $1.167 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 、外界温度为 300 K 时, OLED 器件在发光层 AlQ_3 中可获得最高温度, 其温度值比环境温度高 29 K. 在研发 OLED 器件过程中, 要提高 OLED 器件的热稳定性, 改善焦耳热效应对 OLED 器件性能的影响, 则需要选用热物性较好的 OLED 有机材料, 使有机层与导热性能良好的电极保持良好接触. 通过实验研究, 验证了理论分析的正确性. 在相同的输入功率情况下, 对自制备的若干 Al 阴极厚度不同的 OLED 器件进行了比较分析, 验证了理论模型的有效性. 研究结果对于 OLED 研发具有重要的价值.

关键词: 有机电致发光器件; 热传导; 热阻模型; 温度分布

中图分类号: TN383 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-987X(2009)04-0070-05

Heat Exchange of Organic Light Emitting Devices

XUE Yuan^{1,2}, WANG Xiaoli¹, WU Chaoxin², HOU Xun²

(1. School of Sciences, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China; 2. Key Laboratory of Information Photonic Technique of Shaanxi Province, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Heat exchange characteristic of organic light emitting devices (OLED) is investigated by adopting simplified thermal resistance model and one-dimensional steady state equation of heat conduction. To improve the performance of OLED, new structure of OLED is designed and developed. The inner temperature distribution of OLED is presented and the formula is proposed by considering the relationships of temperature rising with input power, heat exchange coefficients, thicknesses and proportions of substrate and every organic layer film. The research reveals that the inner temperature distribution in OLED is mainly influenced by heat exchange performances of organic layers and substrate in the OLED, and the highest temperature is gained in the light layer AlQ_3 of OLED with 29 K higher than the environment temperature when the environment temperature is 300 K and the power density is $1.167 \times 10^4 \text{ W/m}^2$. So it is benefit to select the organic materials with better thermophysical properties and keep perfect connection between the organic layer and electrode. The experiments verify the validity of the model with different thickness of Al-cathode under the same input power.

Keywords: organic light emitting device; heat exchange; thermal resistance model; temperature distribution

有机电致发光(OLED)器件是一种基于有机材料的电流型半导体发光器件. 当电流通过 OLED 器件时,其电阻特性使器件内部产生焦耳热. 一般 OLED 器件的功率密度为 $10^4 \sim 10^5 \text{ W/m}^2$,其中 99% 以上都转化为焦耳热^[1],使得器件发热升温^[1]、材料形变^[2]、光谱蓝移和展宽^[3]、在加速缺陷点处失效^[4]等,进而导致器件寿命缩短^[5]. 对 OLED 器件的热传导特性进行研究,则有助于改进器件的性能. 文献[6]对 OLED 器件的散热进行了分析,指出器件输入功率失散主要是器件发光、热辐射、对流以及从器件边沿电路原件等方面的失散,并提出了 OLED 器件热导系数与发光区域大小的关系. 文献[7]着重研究了 OLED 器件的热积累,根据输入功率与器件稳态温度线性关系的相似性,说明了 OLED 器件的能量利用率很低,大部分输入功率转化为焦耳热,提出了在相同的驱动电压和输入电流密度下,发光面积较大的器件升温梯度大,发光面积较小的器件升温梯度小,且更容易散热,认为 OLED 器件的主要散热机制是器件和热沉之间的热传导,并由热阻公式给出了器件导热系数.

目前,热传导模型研究一般采用实验数据归纳方法,以 OLED 器件热传导系数作为研究对象,未使用热传导方程进行计算. 本文结合一维稳态有热源的热传导方程,重点研究了 OLED 器件内部各层的热传导特性,推导得出了 OLED 器件内部的温度分布关系,同时通过实验验证了推导分析的正确性和有效性.

1 OLED 器件的热传导模型

根据热传导的对流、传导和辐射 3 种途径,以玻璃为基底的 OLED 器件的散热途径如图 1 所示.

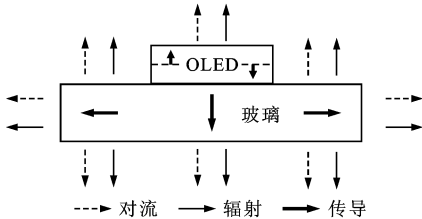


图 1 OLED 器件的散热途径

由于 OLED 器件的输入功率有 99% 以上转化为焦耳热^[1],因此对于 OLED 器件的输入能量转化效率的计算可以简化.

研究表明,OLED 器件内部的热传导问题是一个有内热源的导热问题,则整个 OLED 器件可以视

为具有内热源的多层薄膜. 实际电流是从发光面积的一端注入空穴,从另一端注入电子,电流在器件内部可以近似看作平行于表面的水平传输. 若将多层膜的 OLED 器件整体看作内热源,计算过程是较为复杂的. 研究表明,在载流子的复合界面上(图 1 中虚线所示位置),向上的热流与向下的热流基本相等,可视为没有能量传输. 一般的载流子复合界面位置在不同结构的器件中有所不同,大体在空穴传输层与发光层的界面处,或者在发光层中. 本文设计和制备了一种新型的 OLED 器件,其结构及材料如图 2 所示. 为了便于理论分析,简化物理模型,将含有载流子复合界面的 AlQ_3 层作为 OLED 器件的内热源,并将发光层中间位置作为载流子的复合界面.

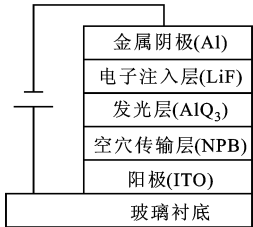


图 2 本文研制的 OLED 器件的结构

由于 OLED 器件是由厚度为 200 nm 以下、面积为 9 mm^2 的多层薄膜堆积而成,相对于 OLED 器件的整体厚度,各薄膜层均可视为无限大. 因此,本文将 OLED 器件内部的传热现象简化为一维大平壁多层薄膜热传导问题,并忽略 OLED 器件内部各层薄膜侧边的热对流和热辐射,建立了简化的热阻模型,如图 3 所示.

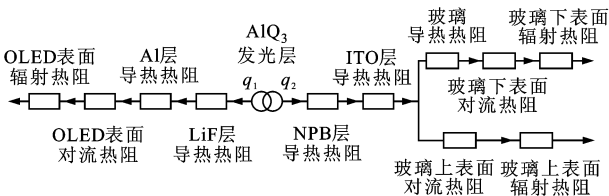


图 3 OLED 器件的热阻模型

图 3 中的 q_1 、 q_2 分别为 OLED 发光层 AlQ_3 的上、下表面向外释放的热量,其和等于输入能流密度. 由图 3 可知,OLED 器件发光层的上表面,对流热阻、辐射热阻、阴极热阻与电子注入层热阻串联连接. OLED 器件发光层的下表面一侧,由于 OLED 薄膜并未完全覆盖玻璃基底,在玻璃基底没有被 OLED 薄膜覆盖的表面上也会产生对流热阻和辐射

热阻,因此 OLED 阳极一侧的热阻呈先并联连接,再与阳极热阻、空穴传输层热阻呈串联连接的关系.通过 OLED 器件的热流密度为

$$q = q_1 + q_2 = \frac{IU}{A_{\text{OLED}}} \quad (1)$$

式中: I 为输入电流; U 为工作电压; A_{OLED} 为器件的发光面积.

根据热阻分析法,热传导过程中热量 Q 与温度差 ΔT 的关系为

$$Q = \frac{\Delta T}{R} = \frac{\Delta T}{l(Ak)^{-1}} = \frac{\Delta T}{(Ah)^{-1}} = \frac{\Delta T}{(1-\epsilon)(A\epsilon)^{-1}} \quad (2)$$

式中: l 、 A 分别为薄膜厚度和面积; k 为薄膜导热系数; h 为薄膜表面传热系数; $1/Ak$ 、 $1/Ah$ 、 $(1-\epsilon)/A\epsilon$ 分别为传热热阻、对流热阻和表面辐射热阻.

将上述关系应用到 OLED 器件一维大平壁多层薄膜热传导模型,可得

$$q_1 A_{\text{OLED}} = (T_{\text{AlQup}} - T_{\text{sur}})/(l_{\text{Al}}(k_{\text{Al}}A_{\text{OLED}})^{-1} + l_{\text{LiF}}(k_{\text{LiF}}A_{\text{OLED}})^{-1} + (A_{\text{OLED}}h)^{-1} + (1-\epsilon_{\text{Al}})(A_{\text{OLED}}\epsilon_{\text{Al}})^{-1}) \quad (3)$$

$$q_2 A_{\text{OLED}} = \frac{T_{\text{AlQdown}} - T_{\text{sur}}}{l_{\text{NPB}}(k_{\text{NPB}}A_{\text{OLED}})^{-1} + l_{\text{ITO}}(k_{\text{ITO}}A_{\text{OLED}})^{-1} + R} \quad (4)$$

$$\frac{1}{R} = \left(\frac{1}{A_{\text{u}}h} + \frac{(1-\epsilon_{\text{g}})}{A_{\text{u}}\epsilon_{\text{g}}}\right)^{-1} + \left(\frac{l_{\text{g}}}{A_{\text{g}}k_{\text{g}}} + \frac{1}{A_{\text{g}}h} + \frac{(1-\epsilon_{\text{g}})}{A_{\text{g}}\epsilon_{\text{g}}}\right)^{-1} \quad (5)$$

式中: T_{sur} 为环境温度; T_{AlQup} 为 AlQ_3 层上表面温度; l_{Al} 为器件阴极厚度; k_{Al} 为器件阴极导热系数; l_{LiF} 为 LiF 层厚度; k_{LiF} 为 LiF 层导热系数; h 为大气对流换热系数; ϵ_{Al} 为器件阴极表面发射率; T_{AlQdown} 为 AlQ_3 层下表面温度; l_{NPB} 、 k_{NPB} 为 NPB 层的厚度和导热系数; l_{ITO} 、 k_{ITO} 为 ITO 层的厚度和导热系数; A_{u} 为基底上表面与空气接触部分的面积; ϵ_{g} 、 k_{g} 、 l_{g} 、 A_{g} 分别为基底的发射率、导热系数、厚度和表面面积.

设发光层中间位置为载流子的复合界面,该界面没有能量传输,因此可获得 OLED 系统的最高温度.由于该层薄膜的热参数对称分布,那么发光层上、下表面的温度相同,即

$$T_{\text{AlQup}} = T_{\text{AlQdown}} \quad (6)$$

设玻璃基底与空气接触的面积为 A_{u} , OLED 器件的发光面积为 A_{OLED} ,由图 2 可知,玻璃基底的表面面积 A_{g} 等于两者之和,即

$$A_{\text{g}} = A_{\text{u}} + A_{\text{OLED}} \quad (7)$$

综合式(1)、式(3)~式(7),可解得 T_{AlQup} 、 T_{AlQdown} 、 q_1 和 q_2 .

在 OLED 器件传热过程中,玻璃基底上表面与空气接触部分的温度 T_{u} 和与 ITO 阳极接触部分的温度 T_{ITOdown} 是相同的,与玻璃基底下表面的温度 T_{d} 不同.温度 T_{u} 可直接测量,而玻璃下表面为 OLED 器件的出光面,发光会影响玻璃表面温度的测量,所以温度 T_{d} 不能通过温度测量仪直接得到.另外,阴极的表面温度 T_{Al} 也不能直接得到.原因之一是 OLED 器件的阴极面积很小(9 mm^2),温度测量仪无法精确测量如此小范围的温度;原因之二是金属薄膜的表面发射率过低,一般温度测量仪是在发射率为 $0.20 \sim 1.00$ 的范围内测量,而 Al 薄膜的发射率仅有 0.05 ,故不能直接测量.

通过以下关系可获得 T_{d} 和 T_{Al}

$$q_2 = \frac{T_{\text{AlQdown}} - T_{\text{ITOdown}}}{l_{\text{NPB}}k_{\text{NPB}}^{-1} + l_{\text{ITO}}k_{\text{ITO}}^{-1}} \quad (8)$$

$$q_2 \left(\frac{l_{\text{g}}}{A_{\text{g}}k_{\text{g}}} + \frac{1}{A_{\text{g}}h} + \frac{(1-\epsilon_{\text{g}})}{A_{\text{g}}\epsilon_{\text{g}}} \right)^{-1} / \left(\frac{1}{A_{\text{u}}h} + \frac{(1-\epsilon_{\text{g}})}{A_{\text{u}}\epsilon_{\text{g}}} \right)^{-1} + \left(\frac{l_{\text{g}}}{A_{\text{g}}k_{\text{g}}} + \frac{1}{A_{\text{g}}h} + \frac{(1-\epsilon_{\text{g}})}{A_{\text{g}}\epsilon_{\text{g}}} \right)^{-1} = \frac{T_{\text{d}} - T_{\text{ITOdown}}}{l_{\text{g}}k_{\text{g}}^{-1}} \quad (9)$$

$$q_1 = \frac{T_{\text{AlQup}} - T_{\text{Al}}}{l_{\text{Al}}k_{\text{Al}}^{-1} + l_{\text{LiF}}k_{\text{LiF}}^{-1}} \quad (10)$$

在 AlQ_3 层内建立坐标系,设 AlQ_3 层与 NPB 层的界面处为坐标原点,厚度方向为 x 轴,阴极方向为 x 轴正方向.根据稳态有内热源的一维单层薄膜热传导微分方程以及 AlQ_3 薄膜两表面的温度 T_{AlQup} 与 T_{AlQdown} 的第一类边值条件

$$\frac{\partial^2 T(x)}{\partial x^2} + \frac{UI}{k_{\text{AlQ}}l_{\text{AlQ}}A_{\text{OLED}}} = 0 \quad (11)$$

$$T \Big|_{x=0} = T_{\text{AlQdown}}; T \Big|_{x=l_{\text{AlQ}}} = T_{\text{AlQup}} \quad (12)$$

$$\frac{dT(x)}{dx} \Big|_{x=\frac{1}{2}l_{\text{AlQ}}} = 0 \quad (13)$$

最后得到 OLED 器件内部产生内热源的 AlQ_3 层内的温度分布函数以及中心温度.

2 实验研究

为了验证本文的 OLED 器件的热传导模型和获得 OLED 器件内部的温度分布,本文设计和制备的一种新结构的 OLED 器件,其结构尺寸和材料分别为: $\text{ITO}(160 \text{ nm})/\text{NPB}(40 \text{ nm})/\text{AlQ}_3(60 \text{ nm})/\text{LiF}(0.5 \text{ nm})/\text{Al}(80 \text{ nm})$,器件发光面积为 9 mm^2 .

在输入电流为 7 mA、运行电压为 15 V 的条件下,对研制的 OLED 器件进行了实验研究. 测量稳态时,玻璃基底上表面与空气接触部分的温度 T_u 与 T_{sur} 相差 15 K. 根据文献[8]所列的材料热物性参数,本文设定 T_{sur} 为 300 K, T_u 为 315 K,设定有机材料导热系数的数量级为 10^{-4} W/(m·K),同时表 1 给出数据分析所需的参数.

表 1 数据分析所需的参数表

L/A	7×10^{-3}
U/V	15
T_{sur}/K	300
A_{OLED}/m	9×10^{-6}
$h/W\cdot(m^2\cdot K)^{-1}$	2
ϵ_{Al}	0.05
l_{ITO}/m	1.6×10^{-7}
$k_{ITO}/W\cdot(m\cdot K)^{-1}$	5
l_{NPB}/m	4×10^{-8}
$k_{NPB}/W\cdot(m\cdot K)^{-1}$	1×10^{-4}
l_{Al}/m	8×10^{-8}
T_u/K	315
A_u/m^2	1.41×10^{-3}
ϵ_g	0.9
$k_g/W\cdot(m\cdot K)^{-1}$	0.8
A_g/m^2	1.419×10^{-3}
l_g/m	7×10^{-4}
l_{AlQ}/m	6×10^{-8}
$k_{AlQ}/W\cdot(m\cdot K)^{-1}$	1×10^{-4}
I_{LiF}/m	5×10^{-10}
$k_{LiF}/W\cdot(m\cdot K)^{-1}$	4.01
$k_{Al}/W\cdot(m\cdot K)^{-1}$	237

根据表 1 给出的分析参数,求解式(1)~式(13)得到: T_{AlQup} 和 $T_{AlQdown}$ 为 327.3 K; q_1 很小, q_2 为 1.667×10^4 W/m²,近似等于输入功率密度; T_{Al} 近似等于 AlQ₃ 层的表面温度; T_{ITOup} 为 320.63 K; T_{ITDown} 为 320.6 K; T_u 为 320.6 K; T_d 为 313.3 K. 实验结果显示,玻璃上表面与空气接触部分的理论温度与实际测量温度基本吻合,相差 5.6 K. 这个温度差是由于本文的实验条件、材料热导系数与文献的条件有差异造成的. 最后,解得 AlQ₃ 层内的温度分布函数为

$$T(x)=-1.944\times10^{15}x^2+1.167\times10^8x+327.3$$

(14)

根据式(14),可计算得到发光层 AlQ₃ 中心(x

$=l_{AlQ}/2$)界面温度为 329.0 K,该温度为 OLED 器件在给定功率及换热情况下运行时内部的最高温度. 该温度与 AlQ₃ 层表面温度相差 1.75 K,与 T_u 相差 8.4 K,说明直接测量并不能准确得到 OLED 器件内部的温度值.

根据在 AlQ₃ 层内建立的坐标系,最终得到 OLED 器件内部的温度分布曲线,如图 4 所示.

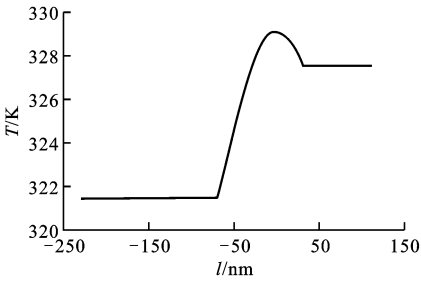


图 4 OLED 器件内部的温度分布

图 4 显示了 OLED 器件从 ITO 层到 Al 层的温度分布情况: -230~-70 nm 为 ITO 薄膜; -70~-30nm 为 NPB 薄膜; -30~30 nm 为 AlQ₃ 薄膜; 30~30.5 nm 为 LiF 薄膜; 30.5~110.5 nm 为 A 薄膜. 在发光区内,由于存在内热源,温度分布呈抛物线状,中心温度比表面温度高 1.75 K. 在无热源的有机 NPB 层中,温度一阶可导,呈线性分布,并且温度下降了 6.67 K. Al 阴极与 ITO 阳极导热性很好,其薄膜两表面温度几乎相同.

由此可知,在给定大气对流的情况下,OLED 器件内部的有机材料层和玻璃基底的传热性能,是影响器件温度分布的重要因素. 在 OLED 器件散热过程中,导热性能良好的 Al 阴极和 ITO 阳极,在器件内部分担的温降很小,但与有机层接触的情况下,则对 OLED 器件的温度分布产生至关重要的作用. 在理想接触条件下,这两层的改进几乎不会对 OLED 器件内部温度分布产生影响. 本文通过增加 Al 阴极厚度的实验,并未测量到器件温度的变化,证实了上述结果.

3 结 论

本文根据热阻分析法和一维稳态有内热源的热传导方程,推导出 OLED 器件运行时温度升高与输入功率,基片及各功能层薄膜的热导系数、厚度、面积之间的关系. 在给定 OLED 器件热物性参数的情况下,得到了 OLED 器件各薄膜及基底的温度分布结果. 为了便于比较,本文采用了自制备的若干 A

阴极厚度不同的 OLED 器件,在相同的输入功率情况下,不同器件的玻璃基底的表面温度几乎相同,验证了理论分析的正确性和有效性.

研究表明,在功率密度为 $1.167 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 、外界温度为 300 K 时,OLED 器件在发光层 AlQ_3 中可获得最高温度,其温度值比环境温度高 29 K,同时温度值沿 OLED 器件两侧依次递减.在 OLED 器件散热过程中,导热性能良好的 Al 阴极和 ITO 阳极,在器件内部产生最小温降,其温度和与之接触的有机材料层的温度几乎相同.在理想接触情况下,改进电极与有机层几乎不对器件内部温度分布产生影响.器件内的有机层和基底的传热性能,则是影响器件温度分布的重要因素.因此,要提高 OLED 器件的热稳定性,改善焦耳热效应对 OLED 器件性能的影响,需要选用热物性较好的 OLED 有机材料,使有机层与导热性能良好的电极保持良好接触.研究结果有助于改善 OLED 器件的性能,使其具有很好的应用前景.

参考文献:

- [1] GÄRDITZ C, WINNACKER A, SCHINDLER F, et al. Impact of Joule heating on the brightness homogeneity of organic light emitting devices[J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(10):103506.
- [2] KIM J, LEE H H. Wave formation by heating in thin

metal film on an elastomer[J]. Journal of Polymer Science:Part B, 2001,39(11):1122-1128.

- [3] TESSLER N, HARRISON N T, THOMAS D S, et al. Current heating in polymer light emitting diodes[J]. Applied Physics Letters, 1998,73(6):732-734.
- [4] ZHOU X, HE J, LIAO L S, et al. Real-time observation of temperature rise and thermal breakdown processes in organic LEDs using an IR imaging and analysis system[J]. Advanced Material, 2000,12(4):265-269.
- [5] ZHAO Y, LIU S Y, HOU J Y. Effect of LiF buffer layer on the performance of organic electroluminescent devices[J]. Thin Solid Films, 2001,397(1/2):208-210.
- [6] STURM J C, WILSON W, IODICE M. Thermal effects and scaling in organic light-emitting flat-panel displays[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics,1998,4(1):75-82.
- [7] BOROUMAND F A, HAMMICHE A, HILL G. Characterizing Joule heating in polymer light-emitting diodes using a scanning thermal microscope[J]. Advanced Materials, 2004,16(3):252-256.
- [8] 赵镇南. 传热学[M]. 北京:高等教育出版社,2002.

(编辑 杜秀杰)